



TITLE:

光散乱によるSoft Phonon Phase Transitionの研究(物性研短期研究会「間接型強導電性と構造相転移」報告)

AUTHOR(S):

中村, 輝太郎

CITATION:

中村, 輝太郎. 光散乱によるSoft Phonon Phase Transitionの研究(物性研短期研究会「間接型強導電性と構造相転移」報告). 物性研究 1974, 22(4): 412-415

ISSUE DATE:

1974-07-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/88809>

RIGHT:

白根 元

接型と考えて、もう一つのパラメーターを導入する事は納得しがたい。

最近の研究の例として、NbO₂ 及びマグスタイトの相転移を Order Parameter と
言う立場から考察する。

光散乱による Soft Phonon

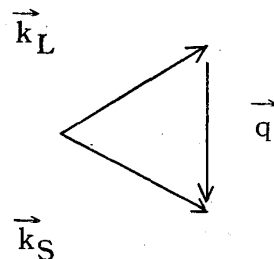
Phase Transition の研究

東大物性研 中 村 輝 太 郎

§ 1. 光 散 乱

光散乱の過程においては、運動量およびエネルギーが保存する：

$$\left. \begin{aligned} \vec{k}_L &= \vec{k}_S \pm \vec{q} \\ \omega_L &= \omega_S \pm \omega_i \end{aligned} \right\} \quad (1)$$



散乱光のスペクトル強度は、レスポンス関数
 $\chi(\omega, q)$ を与える：

$$S(\omega, q) = \frac{-\hbar}{\pi} \{ \langle n(\omega) \rangle + 1 \} \mathcal{I}_m \chi(\omega, q) \quad (2)$$

光散乱は中性子散乱と異り、 $q \sim 0$ における $\chi(\omega, q)$ を与える。

§ 2. フォノンによる光散乱

単一振動子に対するレスポンス関数は

$$\chi(\omega, q) = K (\omega_q^2 - \omega^2 + 2i\Gamma_q \omega)^{-1} \quad (3)$$

で与えられるから、散乱強度は

$$S(\omega, q) = \text{const} \{ \langle n(\omega) \rangle + 1 \} \frac{2 \Gamma_q \omega}{(\omega_q^2 - \omega^2)^2 + 4 \omega^2 \Gamma_q^2} \quad (4)$$

で与えられる。

§ 3. ラマン散乱とブリルアン散乱

光学フォノンによる非弾性光散乱をラマン散乱，音響フォノンによる非弾性光散乱をブリルアン散乱という。ブリルアンシフトは $\Delta\omega = 2v|\vec{k}_L| \sin \frac{\theta}{2}$ で与えられて角度依存性がいちぢるしい。ラマンシフトも q の小さい領域では角度依存性がある。

§ 4. ソフトフォノンの研究

ソフトフォノン相転移においては，格子力の非線型性が重要であり，その結果多音子過程となり，異常に大きな減衰を示す。そのためラマンスペクトルのピークは ω_0 を与えない。また転移点に近づいて $\omega_0 \rightarrow 0$ となると測定上の困難が加わる。従ってありきたりの測定法でなくて，sophisticated な測定法を解析法が必要である。またブリルアンスペクトルの測定では，音響フォノンは，光学フォノンと結合してソフト化するから，測定のコントラストをとくに増大させなければならない。

§ 5. いくつかの話題

5.1 ソフトフォノン

over-damped soft phonon のラマンスペクトルは $\omega=0$ に単一の極大をもつただらかな山になる。

5.2 ポラリトン

中村は，有限の減衰をもつポラリトンの分散曲線は，ラマン散乱を議論するには，ポラリトン方程式を q —実数の条件で解けば得られることを示した。このとき ω は複素数になる。

理論的計算の結果によれば，over damped ポラリトンのラマン line shape は著るしく q に依存し，小さい q に対しては，ストークス反ストークス線が観測されなければならない。中村らは， I_2 フィルターを利用した前方散乱によりはじめてその観測に

成功した。

5.3 $\epsilon(0)$

Burns は、光散乱スペクトルから得られたマイクロ波誘電率 ϵ_m はつねに誘電測定から得た誘電率 ϵ_{cap} よりも低く、 $\epsilon_{cap}/\epsilon_m (>1)$ は転移点に近づくと増大すると主張している。

$S(\omega)$ の極大を与える ω を ω_m とすれば、 ϵ_m は $(d\omega_m/dq)_{\substack{\omega=0 \\ q=0}}$ から定まる。

また、 $S(\omega) \cdot \omega^2$ の極大を与える ω を ω_M とすれば、 ω_M から ϵ_m が定まる。

吾々が $BaTiO_3$ でこれらの方法で決定した ϵ_m は室温で ~ 2000 であった。 $\epsilon_{cap} \sim 2300$ である。ソフトフォノン相転移は、ピエゾ共振周波数からソフトフォノン周波数まで誘電率の周波数分散が存在しないことをもって特徴とするから、 $(\epsilon_{cap}/\epsilon_m) \sim 1$ と考えるべきであろう。

5.4 KDP 系

KDP のラマンスペクトルは、 $BaTiO_3$ の over damp したソフトフォノンによるスペクトルに酷似しており、Kaminov-Damen は $\omega_0^2 \propto (T-T_c)$ に従うソフトフォノンの存在を確認した。

Cowley らはつぎに (5) で述べるように、セントラルモードの考えから KDP 系のスペクトルを解釈している。

KDP のキュリー点以下では重成ピークが現われ、それに対する Blinc の説明がある。

5.5 セントラルモード

中性子散乱においては、いくつかの物質において、いわゆるセントラルモードが観測されているが、光散乱では確かにセントラルモードが観測された例はない。

Cowley らは、理論的に、圧電性結晶では、非調和格子力のために、レスポンス関数 (2) のカッコ内に付加項が加わり、

$$\chi(\omega, q) = K \left(\omega_q^2 - \omega^2 + 2i\Gamma_q \omega - \frac{\alpha T}{1 + i\omega\tau} \right)^{-1} \quad (5)$$

となることを示した。

式(5)から、周波数領域 $\omega\tau \gg 1$ では、 $\omega_\infty \propto (T-T_0)$ (ただし $T_0 < T_c$; ソフトフォノン周波数は $\omega_0 \propto (T-T_c)$) に従う周波数が観測されることになる。

この考えは、Katiyer ら、She らの実験で支持されたが、5.4 で述べた Kaminov, Damen の解析とは矛盾する。

Thomas は、気液相転移に見られるレーリー線のいちじるしい温度変化は、固体の相転移では存在しない可能性のあることを指示した。

Steigmeier が SbSI で critical scattering を観測したといているのは周波数範囲からみて疑問である。

5.6 $T > T_c$ における BaTiO_3 のラマン散乱

Fontana-Lambert は、対称性からラマン不活性であるべき $T > T_c$ でラマン散乱を観測した。Borhasa-Porto は結晶の吸収スペクトルの温度依存性のために見かけのラマン散乱を観測したのであると云ったが、Quittet-Lambert は Porto らの議論は Ar レーザーに対するものであり、ラマン分光の行なわれた He-Ne の領域では、その議論はあてはまらなないと反論した。

5.7 音響フォノンとソフトフォノンの結合

音響フォノンが $q=0$ のソフトフォノンと結合してソフト化することは、Cummius らによって KDP で、Fleury らによって BaTiO_3 で観測された。

最近、ゾーン境界のソフトフォノンと結合して、音響フォノンがソフト化し、その巾が異常を示すことが、吾々によって見出だされた。